BLEND OF DIETHANOLAMINE DERIVATIVE FOR IMPROVING LUBRICITY OF FUEL, WITH BIODIESEL FUEL

Patent number:

JP11256180

Publication date:

1999-09-21

Inventor:

BRENNAN TIMOTHY J; BALL KEITH FREDERICK;

BOSTICK JOHN G

Applicant:

ETHYL CORP

Classification:

- international:

C10M133/16; C10L1/08; C10L1/22; C10M101/00;

C10M133/06

- european:

Application number: JP19990008004 19990114

Priority number(s):

Also published as:

EP0936265 (A1)
US5891203 (A1)
JP11256180 (A)
EP0936265 (B1)
CA2256301 (C)

Abstract of **JP11256180**

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a fuel-lubricating additive composition, capable of avoiding failure of a fuel-pouring pump by improving lubricity of a low sulfur fuel, and useful for reduction of the abrasion of an engine driven by a low-sulfur fuel by using a diethanolamine derivative and a biodiesel fuel. SOLUTION: This fuel-lubricating additive composition comprises a blend of (A) a biodiesel fuel [e.g. a lower alkyl (preferably methyl) ester of a mixture of an 12-22C (un) saturated linear fatty acids derived from a seed containing a vegetable oil, concretely a methyl ester of a soybean oil or the like], with (B) a diethanolamine derivative (e.g. a fatty acid amide or a fatty acid ester of diethanolamine and a mixture thereof). The composition is used in a concentration of 10-10,000 ppm expressed in terms of weight/volume in a fuel.

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19)日本国特許庁(J P)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-256180

(43)公開日 平成11年(1999)9月21日

(51) Int.Cl. ⁶ C 1 0 M 133/16 C 1 0 L 1/08 1/22 C 1 0 M 101/00 133/06	識別記号	FI C10M 133/16 C10L 1/08 1/22 B C10M 101/00 133/06 審査請求 有 請求項の数6 OL (全 6 頁) 最終頁に続く
(21)出願番号 (22)出願日 (31)優先権主張番号 (32)優先日 (33)優先権主張国	特願平11-8004 平成11年(1999) 1月14日 09/009152 1998年1月20日 米国(US)	(71)出願人 391002328

^{(54) 【}発明の名称】 燃料潤滑性改良用のジエタノールアミン誘導体とバイオディーゼル燃料のプレンド

【課題】 本発明は、低硫黄燃料の潤滑性を改善するための添加物を提供する。

【解決手段】 本発明は、上記課題のためのジエタノールアミン誘導体とバイオディーゼル燃料からなるブレンドの使用及び上記潤滑性添加剤を含む燃料と添加剤濃縮液に関する。

^{(57)【}要約】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (i) バイオディーゼル燃料及び(ii) ジエタノールアミン誘導体のブレンドからなる燃料 潤滑性添加剤組成物。

【請求項2】 ジエタノールアミン誘導体がジエタノールアミンの脂肪酸アミド、ジエタノールアミンの脂肪酸エステル及びこれらの混合物からなる群から選ばれる請求項1に記載の添加剤組成物。

【請求項3】 バイオディーゼル燃料が植物油性種子から誘導される、12から22個の炭素原子の飽和及び不飽和直鎖脂肪酸の混合物の低級アルキルエステルからなる請求項1に記載の添加剤組成物。

【請求項4】 99から1重量%の請求項1の添加剤組成物及び1から99重量%の溶剤あるいは希釈剤からなる添加剤機縮液。

【請求項5】 主量の低硫黄燃料及び請求項1の従量の 燃料潤滑性添加剤からなる燃料組成物。

【請求項6】 低硫黄燃料で作動するエンジンにおける 燃料ポンプの摩耗を低減する方法であって、上記方法が 上記エンジンに請求項5に記載の燃料組成物を添加し、 燃焼させることからなる方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は低硫黄燃料の潤滑性を改善するための添加剤としてのジエタノールアミン誘導体とバイオディーゼル燃料からなるブレンドの使用、及び上記潤滑性添加剤を含む燃料と添加剤機縮物に関する。

[0002]

【従来の技術】バイオディーゼル燃料は以前から代替ディーゼル燃料として公知である。通常、バイオディーゼル燃料は炭化水素系ディーゼル燃料を置き換えるために使用されている。また、バイオディーゼル燃料と炭化水素系ディーゼル燃料のブレンドは、更に環境にやさしい燃料を得るために製造された。

【0003】例えば、ディーゼル燃料及びジェツト燃料等の中留分燃料などの燃料中に含有される硫黄は、深刻な環境公害を構成すると言われている。それゆえ、このような燃料中に存在する硫黄量を制限する厳密な規制が導入された。残念ながら、適度に低い硫黄含量を有する燃料は、本来的に極めて劣った潤滑性を示し、このために、この燃料を使用する場合、問題が起こる。例えば、ディーゼルエンジンで低硫黄燃料を使用すると、燃料の自然潤滑性能に依存して部品故障を防止している燃料注入ポンプは、しばしば損傷を受ける結果となる。それゆえ、低硫黄燃料の潤滑性能を改善する必要性が存在する。

【0004】EP-A-0608149には、燃料油の消費を低減するために液状炭化水素圧縮点火燃料油への添加剤としてエステルを使用することが開示されている。EP-B-68050

6には、低硫黄ディーゼル燃料燃料への潤滑性添加剤としてエステルを使用することが開示されている。これらの文献では、ジエタノールアミン誘導体を含有するブレンドの使用が示唆されたり、特にバイオディーゼル燃料は教示されたりはしていない。

【0005】EP-A-0635558には、植物油性種子から誘導される飽和及び不飽和脂肪酸の混合物の低級アルキルエステルである潤滑性添加剤を含有するガス油組成物が開示されている。この文献では、特にジエタノールアミン誘導体を含むブレンドの使用は示唆されていない。

【0006】米国特許第4,204,481号では、磨耗を抑制する量の脂肪酸アミドあるいはジエタノールアミンのエステルからなる耐磨耗性圧縮点火燃料が教示されている。この文献では、上記脂肪酸アミドあるいはエステルをバイオディーゼル燃料とブレンドすることは示唆されていない。

[0007]

【課題を解決するための手段】ジエタノールアミン誘導体とバイオディーゼル燃料のプレンドを使用することにより、低硫黄燃料の潤滑性能が改善されうることが見出された。このことにより、低硫黄燃料を使用する環境面での利点を維持しながら、不適切な燃料潤滑性により生じる例えば、燃料注入ポンプの故障などの機械的故障が回避できる。本発明のブレンドは非酸性潤滑性添加剤として機能して、潤滑性添加剤は燃料としての価値(エネルギー)を高める。

[0008]

【発明の実施の形態】本発明は、バイオディーゼル燃料 とジエタノールアミン誘導体のブレンド及び低硫黄燃料 用の潤滑性添加剤としての使用に関する。

【0009】本発明のバイオディーゼル燃料は、植物油性種子から誘導される12から22個の炭素原子の飽和及び不飽和直鎖脂肪酸の混合物の低級アルキルエステルからなる。

【0010】本発明によれば、「低級アルキルエステル」とは、 C_1 - C_5 エステル、特にメチルエステル及びエチルエステルを意味し、メチルエステルが好ましい。

 終的にバイオディーゼル燃料を構成する脂肪酸のメチル エステルを製造するために、メタノールとエステル交換 反応にかけられる。

【0013】本発明に使用される好ましいバイオディーゼル燃料は、大豆ディーゼル、特にメチル大豆エステルである。

【0014】本発明に使用される好ましいジエタノールアミン誘導体には、ジエタノールアミンの脂肪酸アミド及びエステル及びこれらの混合物が含まれる。ジエタノールアミンの脂肪酸アミドあるいはエステルは、脂肪酸とジエタノールアミンの混合物を形成し、混合物を加熱して水を除去することにより製造することができる。場合によっては、水の除去を助けるために、トルエンあるいはキシレン等の水と混合しない不活性溶媒を含めることができる。

【0015】本発明の一つの実施態様として、混合物を 製造する場合、1モルのジエタノールアミン当たり約1 -3モルの脂肪酸が使用される。この反応は、次の式

[0016]

【化1】

3 R-COOH + HN -(C₂H₄OH)₂-により多量のエステルーアミドが生成する。このような エステルーアミドは本発明の範囲内である。

【0021】本発明に有用なジエタノールアミン誘導体を製造するのに使用される好ましい脂肪酸は、約8-20個の炭素原子を有するものである。これらの例には、カプリル酸、ペラルゴン酸、カプリン酸、ウンデシレン酸、ラウリン酸、トリデコイックアシッド(tridecoic a cid)、ミリスチン酸、ステアリン酸、アラキドン酸、及びこれらの混合物がある。

【0022】更に好ましくは、脂肪酸は、ヒポゲイック アシッド(hypogeic acid)、オレイン酸、エライジン 酸、エルカ酸、ブラシン酸等の不飽和脂肪酸である。

【0023】最も好ましい脂肪酸はオレイン酸である。したがって、好ましい添加物は、N,N-ビス-(2-ヒドロキシエチル)オレアミド、N-(2-ヒドロキシエチル)アミノエチルオレエート及びこれらの混合物である。本発明に使用される好適なジエタノールアミン誘導体には、ここに引用することにより包含される米国特許第4,204,481号で教示されているようなものが含まれる。

【0024】好ましくは、ジエタノールアミン誘導体に 対するバイオディーゼル燃料の割合(重量/重量)は、 約10:1から約1:10の範囲である。 (こ B-CPONは脂肪酸が炭化水素残基である)により、主としてアミドを生成するように進む。 【0017】ジエタノールアミンの一部は、次の式 【0018】

RCOOH+HN(C2H4OH) - RCH4OH C2P4OH+HN(C2H4OH) - RCH4OH

【0019】上記反応生成物は、蒸留により分離され、ディーゼル燃料組成物において別々に使用される。好ましくは、これらは分離されずに、混合物で使用される。この混合物にはまた、ジエタノールアミンの脂肪酸エステルーアミドも含まれる。等モルの脂肪酸とジエタノールアミンを反応させると、エステルーアミドは殆ど生成しない。しかしながら、1モル以上の脂肪酸を1モルのジエタノールアミンと反応させると、次の式

[{{£3}} O O || → RC-N-C₂H₄O-C-R

[0020]

► RC-N(C₂H₄O-C-R)₂ 【0025】本発明の炭化水素留分燃料には、ディーゼル燃料及びジェツト燃料等の低硫黄含量の中留分燃料、ケロシン、ガソリンとアルコールのブレンドを含むガソリン、及び低硫黄含量で低潤滑性のすべての燃料が含まれる。本発明の関係において、「低硫黄燃料」という語は、通常0.2重量%以下、好ましくは0.05重量%以下、そして最も好ましくは0.005重量%以下の硫黄含量を有する燃料を意味するように意図される。中留分燃料は、100から500℃、より典型的には150から400℃の沸点範囲を有するものとして通常特徴付けられる。

【0026】通常、燃料中の潤滑性向上添加剤の濃度は、重量/容量ベースで、約10から約10,000ppm、好ましくは約10から約5000ppm、更に好ましくは約25から約1500ppm、そして最も好ましくは約50から約400ppmの範囲である。

【0027】本発明は更に、前述したように主量の低硫 黄燃料と従量の潤滑性向上添加剤からなる燃料組成物を 提供する。このような燃料は、ベースになる燃料と添加 剤を所望の比率で単純に混合することにより調合され る。便宜のため、添加剤は燃料で希釈する濃縮液として 提供されることもある。このような濃縮液は、本発明の 一部を形成し、通常99から1重量%の添加物及び、添 加物に対し1から99重量%の溶剤あるいは希釈剤からなり、溶剤あるいは希釈剤は濃縮液が使用される燃料中に混和し、及び/または溶解することができる。勿論、溶剤あるいは希釈剤は、それ自身低硫黄燃料である。しかしながら、他の溶剤あるいは希釈剤の例には、ホワイトスピリット、ケロシン、アルコール(例えば、2ーエチルへキサノール、イソプロパノール及びイソデカノール)、高沸点芳香族溶剤(例えば、トルエン、キシレン)及びセタン価改良剤(例えば、2ーエチルへキシルナイトレート)が含まれる。勿論、これらは単独あるいは混合物で使用することが出来る。

【0028】 濃縮液あるいはブレンド燃料はまた、他の燃料添加剤を適当な比率で含有することが出来、それによって多機能燃料添加剤のパッケージを提供する。慣用される燃料添加剤の例には、燃料安定剤、分散剤、清浄剤、消泡剤、冷時流動性改良剤、セタン価改良剤、抗酸化剤、腐食防止剤、帯電防止添加剤、殺生物剤、染料、煙低減剤、触媒寿命延長剤及び抗乳化剤がある。記載されている潤滑性向上用添加剤化合物を除いて、多機能性配合物に対する全配合割合は、通常、約200から約2000ppm、好ましくは、約300から約1200ppmである。

【0029】本発明は、低硫黄燃料で作動するエンジンにおける燃料ポンプの摩耗を低減する方法であって、上記方法が上記エンジンに本発明による燃料組成物を添加し、燃焼させることからなる方法である。

【0030】本発明はまた、低硫黄燃料で作動するエンジンにおける燃料ポンプの摩耗を低減する方法であって、上記方法が上記エンジンに本発明に記載される燃料組成物を添加し、燃焼させることからなる方法を提供する。例えば、ディーゼルエンジン、あるいは燃料移送ポンプにおいて見出されるような、ロータリーポンプ及びインライン燃料ポンプの摩耗を低減するために、この燃料は使用される。後者は、燃料タンクと高圧ポンプにおける摩耗を低減するのに好適である。この燃料はまた、ポンプと噴射機構を結合する最終のユニット噴射器において使用される。本発明は殊に、ディーゼルエンジン及びジェットエンジンの運転に好適である。本発明は、次の実施例で例示される。

[0031]

【実施例】本発明の潤滑性添加剤の有効性は、スカッフィング(Scuffing) BOCLE(シリンダー上の球による潤滑性評価装置)試験により評価される。この試験は標準航空機BOCLE試験(ASTM法D5001:「シリンダー上の球による潤滑性評価装置による航空機タービン燃料の潤滑性測定用標準試験法(BOCLE)」、ASTM標準、5章、3巻、1993)の変形であり、試験燃料により潤滑された回転円筒と接触する固定球に1kgの荷重がかけられる。この標準試験

法においては、円筒との定荷重の接触で生じる固定球上の摩耗傷跡の大きさを測定することにより、燃料潤滑性が評価される。しかしながら、標準BOCLE試験は、例えば燃料注入ポンプなど、現場で起こる過酷な摩耗故障のタイプをモデル化する程、印加荷重が高くないという欠点を持っている。

【0032】スカッフィングBOCLE試験は、標準試験にまさる利点をもたらし、異なる潤滑性の燃料の識別、順位付けを可能にする。スカッフィングBOCLE試験はまた、もっと穏やかな摩耗条件下で行なわれる他の燃料潤滑性試験よりも、燃料ポンプで遭遇する摩耗故障の過酷なモードをより近似してシミュレーションする。従って、スカッフィングBOCLE試験は、燃料が運転中にどのような挙動をするかを更に代表的に示す結果を与える。

【0033】スカッフィングBOCLE試験において は、回転円筒と接触する固定球に荷重(0.25-8. 0 kg) がかけられる。球と円筒は標準グレードの鋼製 である。円筒は525rpmで回転する。潤滑性燃料の 温度は、スカッフィング荷重に対し顕著な影響を有する ので、25℃に注意深く制御される。円筒上の球の装置 は50%相対湿度の空気雰囲気におかれる。30秒の予 備試験期間に続いて、荷重が球に1分間かけられる。こ の試験の後、球を装置から取り出し、摩耗傷跡のタイプ と大きさを顕微鏡で調べる。次に、スカッフィング摩耗 故障が起こる迄、段階的に印加荷重を増加し、更に試験 を行なう。摩耗故障が起こる荷重はスカッフィング荷重 と称し、燃料の本来的な潤滑性の尺度である。スカッフ ィング荷重は、穏やかな非スカッフィング条件下で見ら れるものと、外観がかなり異なる球上の摩耗傷跡の大き さと、外観により主として定められる。高い故障時スカ ッフィング荷重を与える燃料は、低い故障時スカッフィ ング荷重を与える燃料よりも良好な潤滑性能を有する。 【0034】表1は本発明の添加剤の組み合わせについ ての有効性を示す。比較例1-5は、添加剤を含有しな いベース燃料 (C. 1及びC. 3)、この例では大豆デ ィーゼル燃料のバイオディーゼル燃料単独(C.2)、 あるいはジエタノールアミン誘導体単独(C. 4及び C. 5) の場合を示す。比較例2は、比較例1に示すべ ース燃料-1を含む。比較例4-5及び実施例6-11 は、比較例3のベース燃料-2を含む。実施例6-11 は、本発明の添加剤の組み合わせを使用して得られる改 良された潤滑性を示す。高いSBOCLE値ほど改良さ れた潤滑性を示す。

[0035]

【表1】

試料	添加剤	· 配合對合 (ppm)	SBOCLE
C.1	ベース燃料 -1		1600.00
C.2	大豆ディーゼル	500.00	2500.00
C.3	ペース燃料 -2		2600.00
C.4	734 1	33.00	3,500*4
C.5	アミドリ	65.00	3,667*3
6.00	アミド ² 十 大豆ディー ゼル・燃料	33/17	3,400*3
7.00	アミド ²⁺ 大豆ディー ゼル 燃料	65/35	3,500*2
8.00	アミド ³ + 大豆ディー ゼル 松科	17/33	3,100*2
9.00	アミド ³ + 大豆ディー ゼル燃料	35/65	3,500*2
10.00	アミドサ 大豆ディー ゼル燃料	17/33	3,300*2
11.00	アミドリ 大豆ディー ゼル燃料 イン・ボルン・エ・カー・フー	35/65	3,600*2

1:オレイン酸ジェダブールアミド

2:ほぼ2:1のオレイン酸ジエタノールアミド/大豆 ディーゼル

3:ほぼ1:2のオレイン酸ジエタノールアミド/大豆 ディーゼル

4:ほぼ1:2のトール油脂肪酸ジエタノールアミド/ 大豆ディーゼル

*x:試験Xの平均

燃料はASTMD-1094水分接触試験にかけられた。D-1094試験は、100mlの目盛付のシリンダー中に共に加えた20mlのpH7の緩衝水と80mlの添加剤を入れた燃料からなる。次に、1秒当たり2-35-10インチのストロークを使用して、2分間シリンダーを水平に振った。2分後、シリンダーを真っ直ぐに立てて、水と燃料を分離し、界面層、及び燃料のヘイズを採点した。比較例4及び5の燃料は、ASTMD-1094水分接触試験にかけると、若干のヘイズを示したが、本発明の添加剤のプレンドを含有する燃料

(実施例6-11)は、同一試験で優れた清澄度を示した。更に、実施例6-11で得られた高いSBOCLEの結果により証明されるように、大量の大豆ディーゼル燃料を使用した場合でも、大豆ディーゼル燃料単独(比較例2)を含有する燃料と比較して、本発明の添加剤のブレンドは、優れた潤滑性能を示すことが、表1から明らかである。従って、本発明の添加剤のブレンドによれば、大豆ディーゼル燃料単独よりも優れた潤滑性を得ることが可能になり、有機アミド単独を使用するのに比べて、改良された清澄性も得られる。

【0036】燃料潤滑性に及ぼすこれらの影響を決定するために、高周波数往復りグ(highfrequency reciprocating rig) (HFRR) 試験により、本発明の添加剤組成物は評価された。自動車及び類似の用途で使用される燃料注入装置における磨耗を最小限にする燃料の能力を評価するために、HFRRの目的は、潤滑性向上添加剤を含有するものも含めて、ディーゼル燃料の潤滑性能を評価することである。荷重をかけた6mmのボールベアリングを、静止した鋼板上で往復運動で動かす試験リグでこの試験は行なわれる。溢れる潤滑剤中で接触させら

れる。金属材質、温度、荷重、周波数、ストローク長及 び外部条件が特定され、ボールベアリングに生じる磨耗 傷跡の大きさが燃料潤滑性の尺度として使用される。

【0037】表2には、燃料に添加された大豆ディーゼル燃料(SOY)とジエタノールアミン誘導体(オレイン酸ジエタノールアミド)(AMIDE)の量、並びに磨耗傷跡の平均直径(MWSD)が示されている。比較例1は、添加剤を含有しないベース燃料である。傷跡が小さいほど、燃料潤滑性が良好であることを示す。

[0038]

【表2】

HFRR 結果	SOY /ppm	AMIDE/ppm	MWSD
比較例 1	0.00	0.00	510.00
比较例 2	500.00	0.00	520.00
比较例 3	0.00	50.00	485.00
実施例 4	75.00	25.00	395.00
実施例 5	150.00	50.00	405.00

上記の表2のHFRRの結果から、本発明の添加剤のブレンド(実施例4及び5)は、ベース燃料あるいは使用した添加剤単独(比較例1-3)と比較して、予想外の優れた潤滑性能を示すことが明らかである。

【0039】本発明は、実施に際しては、かなりの変動を受け易い。従って、本発明は、上記に示した特定の例示に限定されることはない。むしろ、法律問題として適用するこれらの均等物を含めて、本発明は添付の請求の範囲の精神と範囲内である。

【0040】特許権者は、開示されたいかなる実施態様も公共の用に供することは意図していない。開示されたいかなる改変あるいは変更も、文言上請求の範囲の範囲内に入らないとしても、均等物の原則の下に本発明の一部であると考えられる。

【0041】本発明の特徴及び態様は以下の通りである。

【0042】1. (i)バイオディーゼル燃料及び(ii) ジエタノールアミン誘導体のブレンドからなる燃料 潤滑性添加剤組成物。

【0043】2. ジエタノールアミン誘導体がジエタノールアミンの脂肪酸アミド、ジエタノールアミンの脂肪酸エステル及びこれらの混合物からなる群から選ばれる上記1に記載の添加剤組成物。

【0044】3. ジエタノールアミン誘導体がN,N-ビス-(2-ヒドロキシエチル)オレアミド、N-(2-ヒドロキシエチル)アミノエチルオレエート及びこれらの混合物からなる群から選ばれる上記2に記載の添加剤組成物。

【0045】4. バイオディーゼル燃料が植物油性種子から誘導される、12から22個の炭素原子の飽和及び不飽和直鎖脂肪酸の混合物の低級アルキルエステルからなる上記1に記載の添加剤組成物。

【0046】5. バイオディーゼル燃料が大豆ディーゼ

ル燃料である上記4に記載の添加剤組成物。

【0047】6. バイオディーゼル燃料とジエタノール アミン誘導体が10:1から1:10の比(重量/重 量)で存在する上記1に記載の添加剤組成物。

【0048】7.99から1重量%の上記1の添加剤組成物及び1から99重量%の溶剤あるいは希釈剤からなる添加剤濃縮液。

【0049】8. 更に、燃料安定剤、分散剤、清浄剤、 清泡剤、冷時流動性改良剤、セタン価改良剤、抗酸化 剤、腐食防止剤、帯電防止添加剤、殺生物剤、染料、煙 低減剤、触媒寿命延長剤、及び抗乳化剤からなる群から 選ばれる少なくとも一つの添加剤を含む上記7に記載の 添加剤濃縮液。

【0050】9. 主量の低硫黄燃料と上記1の従量の燃料潤滑性添加剤からなる燃料組成物。

【0051】10. 低硫黄燃料がディーゼル燃料、ジェツト燃料、ケロシン、ガソリン、及びガソリンとアルコ

ールのプレンドからなる群から選ばれる上記 9 に記載の 燃料組成物。

【0052】11. 低硫黄燃料が0. 2重量%以下の硫 黄含量を有する上記10に記載の燃料組成物。

【0053】12. 潤滑性添加剤プレンドが重量/容量ベースで、10から約10,000ppmの量で燃料中に存在する上記9に記載の燃料組成物。

【0054】13. 更に、燃料安定剤、分散剤、清浄剤、消泡防止剤、冷時流動性改良剤、セタン価改良剤、抗酸化剤、腐食防止剤、帯電防止添加剤、殺生物剤、染料、煙低減剤、触媒寿命延長剤、及び抗乳化剤からなる群から選ばれる少なくとも一つの添加剤を含む上記9に記載の燃料組成物。

【0055】14. 低硫黄燃料で作動するエンジンにおける燃料ポンプの摩耗を低減する方法であって、上記方法が上記エンジンに上記9に記載の燃料組成物を添加し、燃焼させることからなる方法。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 6

識別記号

// C10N 40:25

(72)発明者 ジョン・ジー・ボステイク アメリカ合衆国バージニア州23015ビーバ ーダム・チスウエルレイン16322 FΙ